

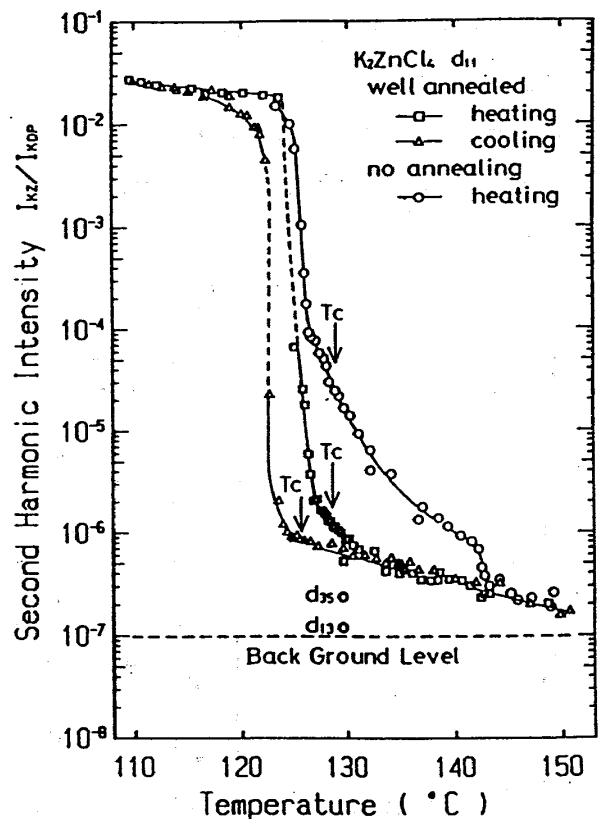
25. 不整合相をもつ強誘電体の光第二高調波発生

山根 勝 敏

不整合相をもつ結晶のうち A_2BX_4 型の一連の強誘電体は、結晶の温度を下げていくと、常誘電相 (P相) D_{2h} - 不整合相 (IC相) - 整合強誘電相 (C相) C_{2v} の逐次相転移を示す。そのIC相 - C相の転移点 T_c 近傍において、ソリトン格子と呼ばれる構造の実現の可能性が理論的に予想されている。今回の実験は、結晶中の微小な分極に極めて敏感な光第二高調波発生 (SHG) の測定によって、 T_c 近傍におけるソリトン格子の形成を調べることを目的として、SHG光強度の温度変化を測定した。用いた A_2BX_4 型結晶のIC相は、その巨視的対称性が D_{2h} でSHGの発生が禁止されているため、ほかの要因による微小なSHGを観測するのに適した結晶である。測定には、 $\lambda = 1.06 \mu m$ のNd:YAGレーザーを用い、 T_c は同時に測定した誘電率のピークより決定した。

実際に測定した $(NH_4)_2BeF_4$ ⁽¹⁾、 $\{N(CH_3)_4\}_2ZnCl_4$ 、 K_2ZnCl_4 のうち、 K_2ZnCl_4 でレーザー光をIC相の変調方向と垂直に入射した場合の結果を図1に示す。図1の d_{11} 成分の温度変化より、 T_c 以上のIC相においても微小なSHGが観測されることがわかる。さらに T_c 直上、 $129.6^\circ C$ における観測より、結晶の欠陥、または高次の4重極子の項によるものと思われるBack ground level より大きなSHGの観測されるテンソル成分は、強誘電相で発生する許されるものだけであることが分かった (図1)。よってこの微小なIC相内のSHG光は、ソリトン格子のC相-like な部分の寄与に因るものであると考えられる。この考えで、観測されるSHG光の大きさがC相の $10^{-4} \sim 10^{-5}$ であるということと、徐々に減少していくその温度依存性も説明できる。

さらにheating 過程の T_c + 数Kにおける強度の増大は、結晶中の不純物等の欠陥によるソリトンのピン止めが、C相-like な部分の片方の分極をもつ領域の増大をもたらし、局所的にマクロな自発分極を持つようになるためであると説明できる。この解釈は、十分なannealを行なわなかったために、結晶中の不純物が多いと思われる結晶で行なった同様の測定結果において、IC相でのSHG強度が増大したことによって裏付けられる。

図1 K_2ZnCl_4 のIC相内でのSHG

(1) 山根 他 日本物理学会1988年会 日本大学-郡山